

# 固定発生源における排ガス中ばいじん（ダスト）の測定方法に関する研究

田森 行男\*

工業技術院 公害資源研究所（資源環境技術総合研究所）

## 要旨

戦後日本の一大画期となった1960年代の高度経済成長期初頭の1962年、大気汚染に関する最初の法律として「ばい煙規制法（略称）」が制定された。この排出規制に対応してその翌年、ばい煙中のばいじん（固体粒子、ダスト）の濃度測定方法の標準規格がJISとして制定された。世界でも全く初めての質量濃度による排出規制であり、規制手段の核となるダスト濃度測定方法は試行的性格が強かった。

本研究では、このJIS規格で採用されたダスト捕集器としてのダストチューブ（吸引ノズルを具えたガラス筒内にガラス繊維を密に充てんしたもの）の捕集性能を理論計算と実験により明らかにして、測定者の調製方法によっては規定の捕集率が確保できないことを示した上で、新たにガラス繊維で作られた円筒ろ紙を活用した全く新しいダスト捕集器を考案した。この方法は間もなく、従来の方法に取って代わることになった。その後、円筒ろ紙の素材としてのガラス繊維が排ガス中の酸性ガスを吸着することを実験で確認し、シリカ繊維、さらにふっ素樹脂繊維を使うろ紙の特性評価を行い、各種ろ紙の適切な普及につなげていった。

次に、ダスト測定では、採取する試料ガス中のダストが慣性力を持つことから、排ガスのサンプリングにおいては排ガスと同じ速度で試料ガスを吸引（等速吸引という）することが大前提となる。このため、本番のサンプリングに先立って排ガスの温度、水分、成分、さらに静圧と流速を予備測定することにより、等速吸引を厳格に実施するための試料ガス吸引流量を計算しておかなければならない。この予備測定を必要とせず現場で直ちに等速吸引によりサンプリングができる方法の研究を進めた。大きくは2つの方法であり、排ガスの静圧と同じ静圧で試料ガスを吸引する静圧平衡方式と、排ガスの動圧と同じ動圧で試料ガスを吸引する動圧平衡方式のダスト濃度測定装置を開発した。後者は、円筒ろ紙の背後にベンチュリ管を設けて、ここで得られる差圧を吸引ノズルの近傍に併設したピトー管の動圧と平衡させることで等速吸引が実現でき、かつマイコンを用いて両者を平衡させて自動採取ができるようにしたものである。この方法では排ガスの速度とその時間的変化が同時に得られる利便性もあり、一般に広く採用されることになった。

これらの成果はJIS規格の改訂において採用され、現在の測定方法の骨格となった。

以上の手分析的（マニュアル）なダスト濃度測定方法に次いで、自動連続測定に関する研究に着手した。大気中の浮遊粒子状物質（SPM）濃度の自動測定に用いられる $\beta$ 線吸収方式を固定発生源に適用した装置の開発、及び発生源における排出濃度の低下傾向への対応

※ Ikuo TAMORI ハンガリー ドナウイバロシュ工科大学 名誉教授

を考慮し、ダクトの両側に LED を用いた 2 台の投受光器を設置して、測定系の汚損と光源の劣化を自己補償する光透過式装置の試作、評価に関する研究を行った。後者は排出濃度が低下しつつある大規模発生源施設での排出監視と高性能集じん装置稼働の最適化の目的で活用され実績を重ねた。

最後に、ダストの濃度以外の物性測定方法として、液滴粒子（ミスト）の濃度とその粒子径分布、ダストの電気抵抗率、そしてガス状物質が大気中へ放出された後に冷却により凝縮生成する凝縮性ダストに着目した測定方法の研究を行い、いずれもこれまで実用化が困難であった諸問題点を解析した上で各種の測定方法を開発し、研究室での基礎的実験及び現場実証試験を通して確認したそれらのすぐれた性能と有効性について報告した。

## 1. はじめに

1960 年代は日本の戦後産業経済の発展史上で画期的な高度成長を達成した時期であるが、他方では全国各地で産業公害問題が噴出し、大きな社会問題となっていた。この問題への行政的対応として、1967 年に「公害対策基本法」が制定され、翌年には「大気汚染防止法」が制定され、1970 年の「公害国会」において同法は排出基準の厳格化も含めて抜本的に強化された。

この「大気汚染防止法」の前身として、あまり知られていないが、大気汚染に関しては我が国で最初の法律として「ばい煙規制法（略称）」が 1962 年に制定されていた。第 2 次大戦後の復興過程で、とくに京浜、阪神、北九州などの大工業地帯を中心に、石炭燃焼に伴い発生する公害問題に各自治体は条例制定で対応していたが、国としての法制定への要求が全国的に高まったことによる。新法では、指定地域におけるボイラーなどの特定発生源施設に対して遵守すべき排出基準が制定され<sup>1)</sup>、この基準値適合を評価するための測定方法として JIS 規格<sup>2)</sup> が法の施行に合わせて翌年に制定された。

固定発生源から排出されるダストの質量濃度の測定は、規制によって設置が求められる集じん装置の性能測定のためにも不可欠であり、測定方法の確立はこの面からも以前から産業界の強い要請となっていたものであった。

著者は学生時代に、大学の学生部長をされていた庄司光工学部教授らが著して間もない岩波新書「恐るべき公害」（1964 年）を読んで啓発を受け、固気系分離機械的単位操作の講座（吉岡直哉教授）においてエアフィルターのろ過に関する研究に携わったことから、当時の工業技術院資源技術試験所を志して入所し、燃焼技術部のばい煙処理・測定を対象とする研究室に所属したが、その翌年に公害部門に公害計測課が新設されて、志願してその研究室に移りダスト計測を主な研究対象とすることになった。

## 2. 当該技術の発展の推移（背景）

### 2. 1 ダスト捕集器

従来、条例による規制で採用されたばいじん（ダスト）測定方法は「リングルマン・スモークチャート」<sup>3)</sup>と称し、6段階の濃淡の度合いで表わした図の黒さと煙突から排出される黒煙の濃さとを目測で比較する、一種の相対評価方法であった。しかしこれでは新法における質量濃度(g/Nm<sup>3</sup>、Nは0℃、1気圧の標準状態を表わす)に対応し得なかった。新しく制定されたJIS規格<sup>2)</sup>では、試料ガスを採取するための吸引ノズルを具えたガラス筒に直径7~10μmのガラス繊維を密に充てんした「ダストチューブ」と称するダスト捕集器を採用し、これを煙道・ダクト内に挿入して真空ポンプで試料ガスを吸引し、吸引した積算ガス量を流量計で測定して、ダスト捕集器の捕集前後の秤量値の差を用いて濃度を計算することにした。Fig. 1に、現在の規格に図示される試料採取装置の構成例を示す<sup>2)</sup>。

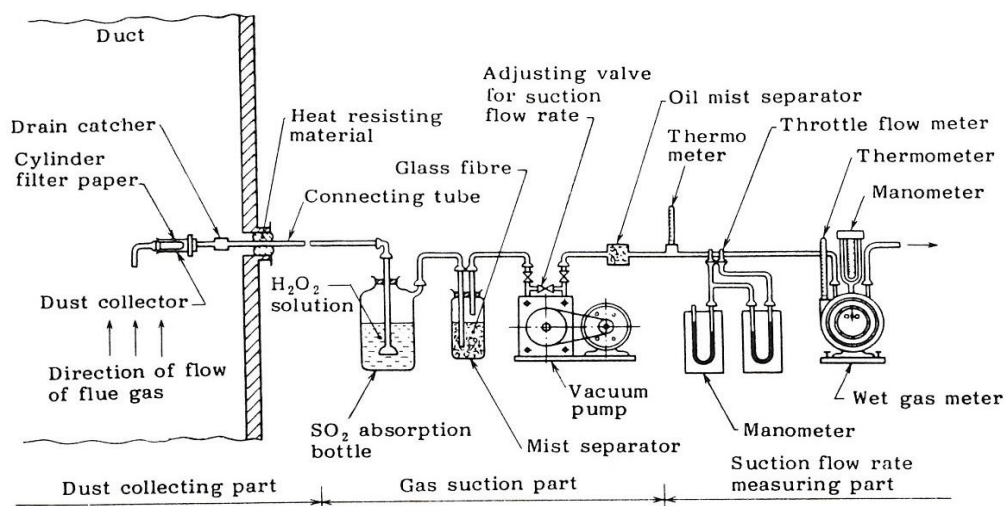


Fig. 1 Example of construction of ordinary-type sampling apparatus

一般に煙道、ダクトにおける排ガスのサンプリングでは、排ガスの温度が極めて高く（とくに省エネが進んでいなかった当時は現在よりはるかに温度が高かった）、排ガス中には高濃度の亜硫酸ガスあるいは一酸化炭素が含まれ、排ガス中の水分割合は10%前後と高く、さらに正又は負の高い静圧の状態にあるから、厳しい安全上の問題と使用する器材の耐熱性の問題を伴っていた。後に労働災害として問題となるアスベストは、断熱材として当時不可欠だった。そしてこの測定方法では、ダスト捕集器としてのダストチューブの調製と現場での事前の予備測定、そして本測定でのサンプリングにおける等速吸引の監視とポンプの調節弁の操作など、極めて複雑かつ厄介で時間がかかり、また熟練を要した。とりわけダストチューブの事前調製では、ガラス繊維のガラス筒内での密な充てん（前方を疎にして後方を密に）が容易ではなく、細かいガラス繊維を充てんする際に繊維片が散乱し、腕や首などの露出部に付着して数日間違和感が抜けない苦い体験を繰り返した記憶がある。また、捕集率として99%以上を求めているが、充てんの仕方によってはムラが生じて規定される性能の確保が危ぶまれる上に、その性能の確認は事実上できないものだった。

この規格の制定に当たっては、海外の関連規格も参照されたことが JIS の最後の解説に記される。米国では ASME PTC27(1941)<sup>4)</sup>があり、英国には BS890(1940)<sup>5)</sup>があったが、いずれも集じん装置の性能評価を目的としており、基本的にはサンプラー（ダスト捕集器）をダクトの外に置くもので、日本で規格の採用に際して第一として考えたダクト内部挿入の方式ではなかった。サンプラーを外に置く形式では、ダスト捕集器の部分までのダクト外の吸引管を凝縮防止のために保温加熱する操作が必要であり、さらに内部に挿入した吸引ノズルから外部に置かれたダスト捕集器に至るまでの吸引管内部に沈着したダストを洗浄して分離し、これを蒸発乾固して秤量するという極めて厄介な操作が求められる。

なお、前二者より遅れて制定された英国の BS3405 (1961)<sup>6)</sup>では、ダスト捕集器について一般的仕様を規定するだけで、その形状の例示も特定もしていない。また、西独が VDI 2066(1966)<sup>7)</sup>、米国では新設された EPA（環境保護局）が CFR 40 (1971)<sup>8)</sup>を制定したが、いずれもダスト捕集器をダクト外に置く形式である。とくに EPA 方式はダクト外に設けた円形ろ紙の後流に 4 本のインピンジャー（氷水浴槽）を置く方法で、操作が極めて煩雑となる上に、凝縮性ダストを加える形として従来の測定値との間に生じる大きな差が長い間議論の対象となった。こうした諸外国の測定規格を概括して紹介したことがある<sup>9)</sup>。

## 2. 2 平衡形サンプラーの開発と等速吸引の自動化

先に述べたように、固定発生源における排ガス中ダストのサンプリングにおいては、ガスの試料採取とは異なり、ダスト粒子が慣性力を持つために排ガスの速度と同じ速度で吸引しないと少なからぬ誤差を生じる。その測定誤差の評価については、古くから多くの研究が行われ、著者の大学院生時代にも隣の研究室で山中ら<sup>10)</sup>が研究テーマとしていた。こうした諸成果の中でも、Watson 式<sup>11)</sup>、Davies 式<sup>12)</sup>等が比較的簡単な式で信頼度の高い推定ができることの評価が定着しつつあった。筆者らも（社）日本環境測定分析協会の技術委員会に参加して共同実験を行い、Davies 式に高い評価を与えた<sup>13)</sup>。しかし、ことさらに非等速吸引をして、その誤差を計算して測定値を補正するという迂遠な方法を取らなくても、常に等速吸引を実行するのがより確実なやり方に違いない。この観点から、標準規格では等速吸引を大前提とした上で、一定の許容誤差を規定する形式を採用している。

この等速吸引を厳密に実行するために、本測定に先立って測定対象施設や生産工程の操業状況を排ガスの時間的変動や周期性等も含めて調べ、排ガス条件が比較的安定している時間帯を選んで、排ガスの温度、水分、成分、そして静圧と動圧（＝流速）等の予備測定を行う。こうした測定値を使って本番での試料ガス採取を確実に行うための等速吸引流量を計算し、その上で等速サンプリングを実行する。したがってこの測定方法では、発生源施設の稼働に時間的変動がある場合には対応できないことになる。

等速吸引操作を、事前の予備測定なしに直ちに実行するための平衡形試料採取法は、アイデアとしては以前から知られていた。ベルヌーイの定理に基づけば、ダクト内に挿入された吸引ノズル先端の近傍における静圧又は動圧が吸引ノズル内の静圧又は動圧と等し

いときに等速吸引が成立するので、そのような吸引ノズルの設計をすればよいことになる。しかし実際には実用の製品はなかったし、実験データを含む研究報告すらも皆無だった。

### 2. 3 ダスト濃度の自動連続測定方法

固定発生源施設における排ガス中ダスト濃度測定は、施設の燃焼管理、安全管理、あるいは粉体関連産業におけるプロセス管理の目的でも活用されていたが、ばい煙規制法に対応した監視目的としても活用したいとの要請が産業界の一部にあった。

当時、市場に供されたダスト計測器を測定原理により大別すれば、光透過式、光散乱式、接触帯電式、β線吸収（透過）式、電気天秤式の5種があった。このうちの前3者は、ダクト内の排ガス試料を吸引することなく流れの状態での濃度に対応する相対量を検知する。しかしダスト粒子系の違いにより指示値と質量濃度の関係は異なるから、実際にはその施設ごとに、場合によっては時間周期ごとに測定値のJIS法による質量濃度への換算を必要とすることがある。一方、後の2者は検出部をダクト外に設置する形式を取り、それぞれに用いる質量検知器（β線透過量と特殊天秤）の化学天秤との等価性の検証のほか、ダクト外捕集という点で吸引管内部のダスト沈着の問題を抱える。

## 3. 当該技術実現のキーとなった主要なポイント

### 3. 1 円筒ろ紙を用いたダスト捕集器

#### 1) ダストチューブの捕集率推定

従来、ダスト捕集器として用いられたダストチューブ（Fig. 2）では、測定者自身がガラス繊維を充てんする手作業により99%以上の捕集率を確保しなければならないという不確定要素を含む点に着目した。

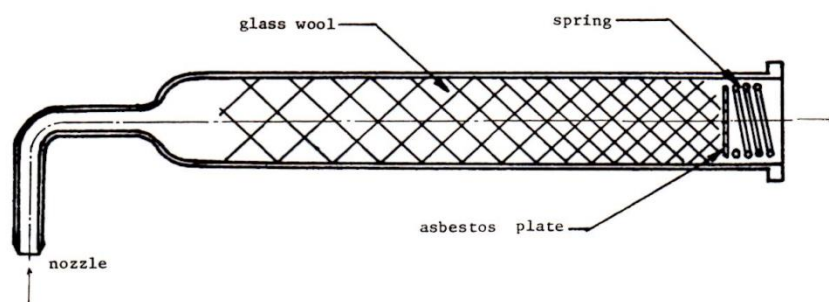


Fig. 2 Dust tube filled with glass wool

著者は大学で「エアロゾルのエアフィルターによるろ過」を修士課程の研究テーマ<sup>14)</sup>としたので、その経験を用いて繊維充填層における粒子捕集の機構として慣性衝突、拡散そして遮りによる捕集効果と対数透過理論に基づいて計算し、捕集率の推定図を作成した。さらにDOP(Di-octyl phthalate)の粒子径 $1\mu\text{m}$ の単分散粒子を用いた実験により、理論計算の推定を検証した<sup>15)</sup>。この結果、充てん層厚さが10cm以上であれば確実に99%以上の捕集率が期待できることを明らかにしたが、充てん密度として規定の $0.25\text{g}/\text{cm}^3$ を満たさないと捕集率99%を切ることになり、試料調製の重要性を指摘した。

## 2) ガラス繊維製円筒ろ紙を用いたダスト捕集器の開発

前述のように、従来からもっぱら用いられたダストチューブ法では調製に熟練と労力を要し、かつその捕集特性は個人差が大きい点を考慮して、当時開発されて間もない円形のガラス繊維製ろ紙に着目し、これを円筒形として吸引ノズルの着脱が測定現場でも容易となるガラス製のダスト捕集器を考案した (Fig. 3)<sup>16)</sup>。その捕集性能について DOP 単分散粒子を用いて実験し、99%以上を安定して確保できることを確認した。

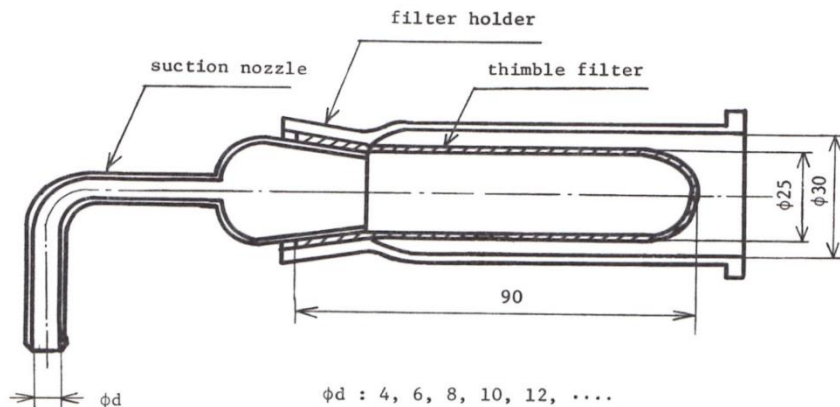


Fig. 3 Dust sampler using cylindrical filter paper

この方式によれば、一定規格のろ紙を用意するだけでよいので前準備は極めて簡単となり、圧力損失が従来の1/10以下となるので吸引流量を大きく取れて採取時間が短縮でき、従来は困難だったダストの化学分析にもそのまま供することができるなど、多くの利点を持つことを示した<sup>17)</sup>。

なお、ガラス繊維製の円形ろ紙を用いたダスト捕集器も同じ頃に市場に供されて、1973年に改訂された JIS 規格に両者が採用されたが、煙突側壁に設けられる測定孔の直径は10cm程度なので円形ろ紙の有効直径は3cm程度となり、円筒ろ紙の方がろ過面積をはるかに大きく取れるので試料採取に有利であり、広く活用されることになった。円筒ろ紙によるダスト試料採取法は、「大気汚染防止法」により新たに排出規制の対象となったカドミウム、鉛などの重金属成分の分析方法の JIS 規格にも採用された<sup>18)</sup>。

## 3) 円筒ろ紙に使用されるろ過材と排ガス特性の関係

使用されるろ過材として、ガラス繊維製ろ紙は排ガス中の二酸化硫黄を少なからず吸着する特性を持つこと<sup>19)</sup>、続いて開発されたシリカ繊維製ろ紙は酸性ガスの吸着はないが加熱減量特性が小さくないこと<sup>20)</sup>、さらに湿式排煙脱硫装置の後流で測定する場合にはふっ素樹脂製ろ紙が有利となるが、排ガス温度が酸露点以下では硫酸ミストが同伴して通常の実験では著しく高い測定値を得ること、その場合の補正方法などを示した<sup>21)</sup>。これらの内容はいずれも JIS 規格のその後の改訂において採用された。

## 4) 湿式排煙脱硫装置後流でのダスト測定

硫黄酸化物の排出規制強化に伴い、石炭や重油の燃焼施設では多くの場合に湿式排煙脱硫装置が設置されたが、ダスト濃度測定はこの装置の後流で行われる。脱硫装置の後には

気液分離装置（デミスター）が設置されることが多いが、この場合には同伴する液滴粒子（ミスト）がダスト捕集器に持ち込まれてトラブルの原因となる。このため、円筒ろ紙の前段にインパクターを装着してミストを分離捕集する方式を考案し、その捕集特性を検証した<sup>22)</sup>。この方式も JIS 規格の改訂に際して採用され、広く活用される。

### 3. 2 平衡形試料採取装置

#### 1) 静圧平衡形ダストサンプラー

従来、図面で提示された平衡形ダストサンプラーは、実際の現場では動圧と比べて静圧がはるかに大きい値を取ることもあり、アイデアとしてはもっぱら静圧方式だけが提示された<sup>2)</sup>。Dennis ら<sup>23)</sup>は吸引ノズル内の静圧孔をできるだけノズル先端に近づける形式の平衡形ノズルを試作したが、ダスト捕集器をダクトの外に置く形式とした。筆者らは、静圧平衡形ノズルを円筒ろ紙に直結したサンプラーを開発し (Fig. 4)、試験風洞を用いて吸引特性を調べた。その結果、従来考えられた方法ではノズル先端で発生する圧力損失のために正確な等速吸引が実現できないことが分かり、圧力損失を補正するために吸引ノズルの内径を拡大させて静圧を測定することで確実に等速吸引が実現できること、また補正係数と拡大させた内径との関係を定式化できることを明らかにした<sup>24)25)</sup>。

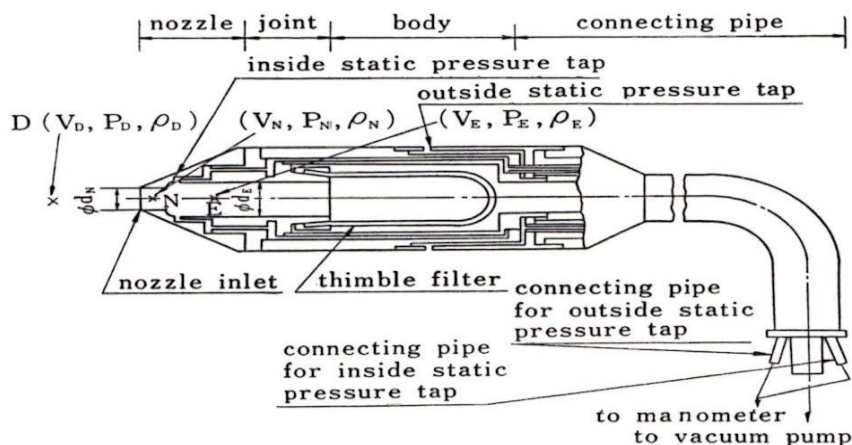


Fig. 4 Isokinetic dust sampler of static pressure balance type

#### 2) 動圧平衡形ダストサンプラー

上記の静圧平衡方式と並行して、動圧平衡形にも着目して検討を進めた。排ガスの動圧はサンプラーと同時にピトー管をダクト内へ挿入して吸引ノズル近傍に並置して測定し、一方、吸引ノズル内では円筒ろ紙の後方にベンチュリ管を設けて差圧を検知し、差圧とピトー管の動圧を等しくすることで等速吸引が得られるようにベンチュリ管を設計した (Fig. 5)。吸引ノズル内の差圧検出方法として、当初は円筒ろ紙の背後の管径を絞って吸引ノズルと同一径として小型ピトー管で動圧を測定する方法、さらに吸込みノズルを活用する方法を併せ検討したが、製作のし易さの点でベンチュリ管が有利と判断した。これら各種の方法による試作サンプラーを試験風洞の中に置いて特性実験を行い、いずれの方式でもダクト内流速と吸引ノズル内の流速との間に高い相関性をもつことを示した<sup>26)</sup>。

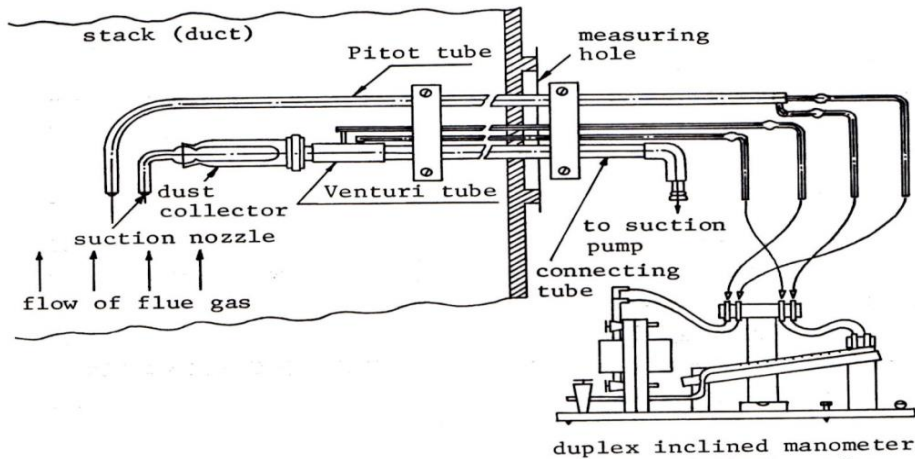


Fig. 5 Isokinetic dust sampler of dynamic pressure balance type

### 3) 等速吸引の自動化

動圧平衡形と静圧平衡形のいずれにしても、2つの圧力を目視しながら等しくなるように吸引流量を制御することで簡単に等速吸引が実現できることになった。排ガスの諸特性に時間的変動がなければ、最初に設定した状態でサンプリングを続ける。ただし、ダスト捕集器でのダストの捕集量の増加に伴い抵抗のため吸引流量が低下するので、吸引装置（真空ポンプ）の調節弁を絶えず調節する操作が必要である。その上でも、従来の測定方法では排ガスの時間的変動のないことを前提としたが、しかし実際には生産工程の特性により時間的変動はしばしばみられる現象である。

このような場合でも、平衡形サンプラーを用いるなら、2つの圧力を検知して電気信号に変換して両者の差をゼロとなるように制御信号をサーボバルブに伝達して等速吸引することができる。この自動化機構を組み込んだ自動試料採取装置の等速吸引特性を試験風洞において実験し、ダクト内流速と吸引ノズルを通してダスト捕集器に吸引される流速との間には高い相関 ( $\gamma = 0.999$ ) があること、及びダクト内流速の急激な変動にも2~3秒の遅れで追従できることを明らかにした<sup>27)</sup>。この装置はFig. 6に示すように、ダクト内

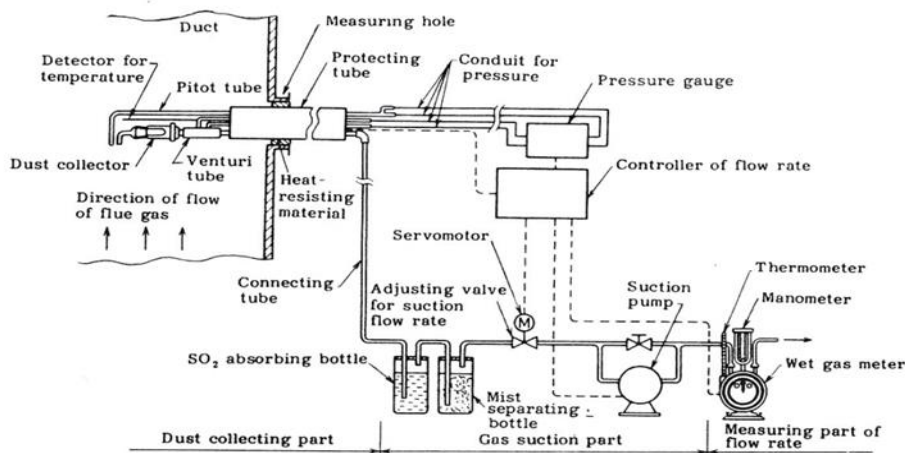


Fig. 6 Automatic dust sampling apparatus of dynamic pressure balance type



に挿入するピトー管とダスト捕集器(Dust collecting part)、ダクト外に設置するガス洗浄器、差圧変換・自動制御器、ガス吸引ポンプ(Gas suction part)、そしてガスメーター(Measuring part of gas flow rate)から構成される。

### 3. 3 自動連続測定装置

#### 1) LED と自己補償システムを用いた光透過式

装置の形式が極めて簡単で、ノンサンプリング（非吸引方式）で実時間の連続測定が可能な光透過式ダスト濃度計は、古くからばい煙濃度監視計として用いられ、ボイラーの安全管理の目的でも活用されてきたが、光源の光量不足や投受光面のダストによる汚損、光源及び受光センサーの経時劣化といったトラブルを抱え、長い光路長を要する大規模発生源施設やダストの低濃度化傾向に対処し得ない問題があった。

著者らは沖電気（株）との共同研究により、これらの問題を解決する斬新な光透過式ダスト濃度計を開発した。従来から用いられた白色光源に代えて小型で発光強度の大きいLED（波長 800nm）を光源に採用し、この光をビームスプリッターにより透過（測定）光と参照光とに分離した上で、ダクトに対面させた 2 台の受光器にそれぞれダブルパスを透過させた。そして得られる 4 個の出力電力を測定して演算することで自己補償システムを構成して光透過式ダスト濃度計を試作し、低濃度に対しても感度の高い測定ができ、光学系の経時劣化を受けずに測定できることを 4 種類の試験ダストを用いた実験により明らかにした<sup>28)29)</sup>。この測定装置は、石炭火力ボイラーなど大規模施設の燃焼特性や電気集じん装置の最適稼働のためのモニターとしても広く活用された。

また、ディーゼル自動車から排出される黒煙をシャーシダイナモ上で試験測定するためにこの装置を適用し、質量濃度と光学濃度との間に高い相関性を確認した。さらに、ダストの物性（屈折率など）を把握しておけば、光学濃度を質量濃度に換算できることを理論的に解明した<sup>30)</sup>。

#### 2) $\beta$ 線吸収式

$\beta$  線吸収（透過）法は、 $\beta$  線源に放射性同位元素 Pm-147 を用いて密閉源として得られるろ紙上のダスト捕集前後の  $\beta$  線透過量の差が化学天秤と等価の質量測定法として評価されて、大気中浮遊粒子状物質 (SPM) の環境基準適合性評価のための自動測定器として世界的に活用されるようになってきている。日本で初めて実用化されて普及しつつあるとき、この方式を固定発生源のダスト質量濃度の連続測定方法として適用するための研究を行った。はじめに、 $\beta$  線透過検出器の化学天秤等価性及びろ紙上のダストの不均等捕集の影響、ガラス繊維ろ紙及びシリカ繊維ろ紙の排ガス吸着特性を明らかにした上で、装置をダクト外に置く形式となるために吸引管内ダスト沈着の影響を受けて 10% 強の低い値となることを明らかにした<sup>31)</sup>。

こうした管内ダスト沈着を防止又は補正するために、三協電業（株）との共同研究により、吸引管に対して機械的振動を与える方法及び粗粉吹込み法を用いた実験を行い、それぞれに一定の有効性を確認できた<sup>32)33)</sup>。

その後、電気化学計器（株）との共同研究により、シースイアを導入して吸引管内のダスト沈着を防止したβ線吸収式ダスト濃度計の開発研究を行い、フライアッシュ（JIS-10種）を用いた実験により管内沈着を15%から2%へと大幅に抑制できることを示した。この装置ではマイコンを用いた等速吸引機構を併設しており、長時間の連続使用に耐えて汎用性の高い装置であることを確認した<sup>34)</sup>。

### 3. 4 その他のダスト物性測定方法

#### 1) ダスト・ミストの粒子径分布

排ガス中のミスト（ダストも可）の粒子径分布について、従来用いられたダクト外に置く形式とは異なり、コンパクトにすることでダクト内に挿入して測定できる方法を開発した（Fig. 7）<sup>35)36)</sup>。ジェットノズルと捕集板、そして内壁部を一体としてカセット化した全く新しい発想のサンプラーであり、衝突板で再飛散を起こすウォールロスの評価が問題となるミストの粒子径分布測定に最適として構成した。

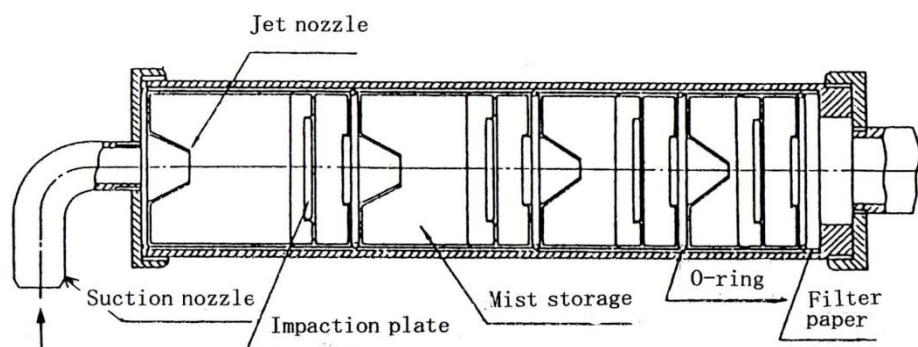


Fig. 7 Cascade impactor of cassette type

大気中浮遊粒子状物質の粒子径分布を連続測定する目的で、多孔板ノズルに対置した捕集板上に水晶発振子を置いて捕集した粒子の質量を検知して分布を求めるサンプラーを開発した。センサーの発振特性の安定性を確保するため、従来のインパクト法とは異なり、各段のノズル径を同一として下段に行くほどノズル数を減少させることで下段でより微細な粒子を捕集して、粒子径分布の時系列変化を知ることができる<sup>37)</sup>。

ミストの粒子径分布とその実時間連続測定を可能とするニクロム薄板を用いた手法によるサンプラーを開発し、ミスト濃度測定にも適用できることを示した<sup>38)</sup>。

#### 2) ダストの見掛け電気抵抗率

各種の集じん装置の中でもバグフィルターと並んで最高の集じん性能を誇る電気集じん装置において、その性能を大きく左右する要因はダストの見掛け電気抵抗率であり、その特性を客観的に評価する手法が求められていた。集じん現場でのダスト試料を実験室に

持ち帰って測定する手法を検討し、平行平板形電極を標準法として定めて試料調製と高電圧印加特性、温度、水分量等の諸因子の影響を考察して標準測定方法を提案した<sup>39)</sup>。その後まもなく編成された JIS 原案作成委員会に参加し、この方法は新しく制定された JIS 規格に大きく反映された<sup>40)</sup>。

上記の実験室的測定法とは別に、現場において実排ガス条件下で直ちに測定できる方法として、ろ過捕集-平行平板電極及びサイクロン-同心円筒電極からなる 2 種類の測定方式を考案し、実験結果と併せて報告した<sup>41)</sup>。

### 3) 凝縮性ダスト

固定発生源の煙突から排出される直前の状態では粒子ではないが、煙突口から排出されて大気との混合過程で酸化され冷却して新たに粒子化する「凝縮性ダスト」の実態は、従来はその発想すらもなく、全く把握されていなかった。この凝縮性ダストの測定方法を確立する目的で、(社)日本環境測定分析協会の技術委員会として研究グループを立ち上げ、「空気-直接冷却法」及び「水-間接冷却法」の 2 方式を採用して計 12 施設で現場測定を行い、後者が有利な方法であり標準化に適していることを明らかにした<sup>42)</sup>。

## 4. 考察

### 4. 1 ダスト試料採取方法について

日本の産業公害問題は、世界的にも際立って厳しい社会現象を呈していたこともあり、世界で初めて質量濃度による排出濃度基準を定めた法規制が敷かれて、最初に制定された測定方法の JIS 規格は全く日本独自の測定システムを構築せざるを得ず、極めて試行的な内容のものとならざるを得なかった。その測定システムの中核となるのがダストチューブ法であり、ダスト捕集器の事前の準備調製から試料採取、そして採取後の扱いに至るまで多くの問題を含んでいた。

1960 年代の全国的な公害問題の高まりの中で、「ばい煙規制法」は 1968 年に新しく「大気汚染防止法」として抜本的に作り変えられた。その前年に研究所へ入所した著者は、規制法に基づいて都道府県として現場立入り調査を行う担当者のばい煙測定実務研修の指導にも携わったが、翌年の所の機構改革により新設された公害 2 部第 3 課（計測）に配属されて、引き続き研修指導も行いつつ、主に固定発生源を対象とする計測技術の研究を担うことになった<sup>43)</sup>。

ダスト試料採取システムの中核となるダスト捕集器としてのダストチューブの性能評価では、偶々著者が大学院生時代に用いた研究手法を活用して理論的計算と実験的検証を行うことができた。ちょうどその頃、従来のろ紙素材であるセルロース製のほか、高温の燃焼排ガスに耐え得るガラス繊維製で円形ろ紙が開発されたことを知り、メーカー（東洋濾紙（株））に照会して円筒ろ紙が製作可能との情報を得て、数か月の試行錯誤を経て現在の円筒ろ紙式ダスト捕集器を完成させた。その過程では、ダストチューブのメーカー（濁

川理化学工業（株）の積極的な協力を得ることができた。このとき、メーカーの技術部長（故今江朗氏）から再三、特許ないし実用新案の申請を出さないかと打診されたが、申請はしないで公的機関での公害対策の研究成果を広く社会に還元したいとその都度断った経緯がある。しかしその後、労働組合（商技協）の運動の中で、研究成果の特許化は研究者の権利の問題として捉えるべきと教えられ、また特許実施料が国の収入ともなることで、その後の研究成果は努めて特許・実用新案として申請するようになった。その数は数十件になるが、社会的なインパクトとしては次に述べる動圧平衡形ダストサンプラーとともにこれが最も大きかった。全国で10数万の法に指定されたばい煙発生施設（現在は約21万施設）において毎年2～6回の測定が行われてきたからである。

その後、ダスト試料サンプリングの大原則である等速吸引を容易かつ確実に行うことのできる平衡形ダストサンプラーの開発を課題とした。従来、そのアイデアは静圧平衡形として知られ、幾つかの試作器が実験データなしに図示されていたが<sup>4)</sup>、基本的にダスト捕集部分をダクト外に置くものであり、あるいはダクト内に挿入する形式であっても直径10cm程度の測定孔を通して内部へ挿入することができない大型のものであり、またその等速吸引特性が実験的に検証されていないこともあり、実用性を持たなかった。著者らは円筒ろ紙式のダスト捕集器を活用することで初めてダクト内形式で構成することが可能となると考えて、静圧平衡形の試作開発を進めた。試作器の性能を試験風洞により実験した結果では、静圧差-非等速吸引誤差の性能曲線がどうしても原点を通らないデータを前に長いこと足踏みをしていたところ、Toynbeeら<sup>44)</sup>の試作器の図でノズル内径をわずかに拡大させていることに気付いて、この方法でノズル先端での圧力損失を補償できると考え、ベルヌーイの定理をもとに補正係数と拡大内径との関係式を導き、この結果、ダスト捕集器を内蔵してダクト内に挿入できる静圧平衡形ダストサンプラーを世界で初めて提案することができた<sup>24)</sup>。その成果は世界にアピールするため、著者として初めて英文の報文を作成した。

次の動圧平衡形については考え方は極めて単純であるが、やはりこれまでに実施例をみないものであった。ダクト内にダスト捕集器と平行して挿入したピトー管の動圧と、ダスト捕集器内の円筒ろ紙後方で吸引ノズル内径と同一径に絞られた管内に設けた小型ピトー管の動圧とを平衡させるという考えで、試料採取装置を構成した。しかし小型ピトー管の製作上の困難さもあり、最終的にはベンチュリ管として試作と実験を重ねて目途を立て、両動（差）圧を差圧変換器を通して制御信号としてサーボバルブに送り、吸引ガス流量を自動制御して等速吸引状態を維持するシステムとして完成させた。

システムの試作改良には、発注したダスト測定機器のメーカー（濁川理化学工業（株））の積極的な協力を得ることができた。この方式では並行して動圧（＝流速）が表示できる利点もあり、メーカーの販売網を通して普及し広く活用されることになった。

一方、同様にピトー管を並置し、その流速と同じ速度で等速吸引するための吸引流量をマイコンにより計算して等速吸引する方式も、別のメーカーにより製品化されて活用されるようになった。この場合は平衡形ではないので、別途にガスの密度、水分量を知って等速吸引流量の計算式に入れ込む必要がある。

以上に述べた研究成果の多くは、JIS<sup>2)</sup>のほぼ5年ごとに行われた改訂に際して慎重な審議を通して採用されてきたが、著者自身も1968年の改訂から委員として参加し、1996年の改訂では委員長として取りまとめを行った。

なお、Fig. 3のようなL字形の静圧平衡形の場合、現場のダクト内にフランジを通して挿入する上で困難を伴うが、真直ぐに挿入した後に90度曲げて排ガス流に直面させる方式へ後に改良しており、この形式もピトー管と併用することにより現場で十分に活用できると今でも考えている。

1996年、ISOはダスト測定に関する規格を初めて制定した<sup>45)</sup>。EU諸国と米国の委員だけの規格作りで、日本には声がかからなかった。その内容はごく一般的な測定の仕様を規定するもので、具体的にダスト測定器を指定しないし、吸引ガス流量は積算式でなくても瞬間流量計(オリフィス計)でよいとするなど、大変にラフな作り方である。後年(2004~2005年)、英国、ドイツ、米国の関係者(ISO委員等)を訪問して情報と意見の交換をしたが、彼らは異口同音に自国の規格(欧州はEN規格)が最優先だとしていた。日本の等速吸引式自動試料採取法の有用性を認めつつも、これをISO規格に組み込むことには積極的でなかった<sup>46)47)</sup>。規格のレベルの違いは、排出規制を最も早くにスタートさせ厳しい規制に対応して測定手法を発展させてきた日本の社会的背景に負うところが大きいと考えられる。なお、日本ではろ紙のメーカーは東洋濾紙(株)の専売であったが、後に英国のWatman社が日本市場に参入して一時は大きなシェアを占めたことがあった。ガラス繊維製円筒ろ紙は欧州では使われないが、日本の大きな市場に注目しての進出だった。

#### 4. 2 自動測定方法について

ダスト濃度の測定は、平衡形サンプラーの操作を自動化しても、試料採取前のろ紙の調製や一定時間を要するサンプリング、試料を持ち帰ってからの扱いなど、基本的にマニュアルな測定法の限界を免れることはできない。排ガス中ダスト濃度の全自動測定は、単に環境対策に留まらず、粉体関連の生産管理やプロセス制御の分野での強い要請課題でもある。従来から、光散乱や光透過による光学的手法や粒子の帯電特性に着目した方法、そして上述の一連のマニュアルな測定を全自動化した電気天秤法や $\beta$ 線吸収(透過)法等による装置が市場に供されたことがあった。これらはその測定原理に固有の特徴と限界を持つのでいかに汎用性を獲得できるかが課題であり、一方、ユーザーにとってはその用途に応じた適確な選択と活用が推奨される。

著者らは計器メーカーとの共同により、光透過法及び $\beta$ 線吸収法に基づいて従来法を超える自動測定器の開発を試みた。一方、光透過光強度と質量濃度との間に粒子径分布、光

波長、屈折率等を介して一定の関係にあることを理論的に説明し、波長の異なる数種の単波長光を用いることで質量濃度を実時間で求められることを特許として出願した。このアイデアは注目発明として選定された<sup>48)</sup>。その後かなりの時間を経て、この申請は既知のものとして却下されたが、レーザー技術のその後の発展もあり、装置化を試みる価値はあると今でも考えている。

各種の原理と様々なアイデアに基づく自動測定法は、産業現場からの要請を受けて活用され、開発研究も活性化する。その活性化には、標準化つまり JIS 規格化も大いに貢献する。1970 年代の後半、測定計器メーカーの要請を受けてダスト濃度自動測定装置の JIS 化を進め、当時市場に供されていた 5 種類の装置について著者が委員長として原案を作成したことがある<sup>49)</sup>。しかし本委員会の編成段階で一部産業界からクレームが入り立ち消えとなった。新しい規格の制定が法規制に援用されて、その使用が強制されないかとの懸念が一部の産業界に広まったためとされる。測定原理の異なる方式を 1 つの規格とする点で、また計器としてのトレーサビリティの点で無理があったといえるかもしれない。

その後、こうした測定技術をレビューした拙稿が「オートメーション」誌<sup>50)</sup>に掲載された後、韓国の雑誌に全文そのまま翻訳されていたことを韓国の知人からコピーを送られて知り、驚いたことがある。韓国ではその後、法規制との関連でダスト濃度自動測定器が活用されるようになったことと併せて思い出されるエピソードである。最近日本でも漸く、ISO が自動測定方法の規格を制定<sup>51)</sup>したことを受けて新しい JIS 規格が制定された（著者が委員長を務めた）<sup>52)</sup>。ここでは光透過法、光散乱法及び摩擦静電気検出法の 3 形式が規格の中に組み込まれた。原案作成から実に 36 年後のことであった。この分野の技術発展にとって、貴重な時間を失ったとの思いもある。今後、装置の性能試験方法も含めて、この規格がさらに充実していくことが期待される。

#### 4. 3 その他のダスト物性について

ダスト（粒子）の粒子径分布については、古くから IC や精密機械産業をはじめバイオ、医療関係等で活用されてきたクリーンルームでは粒子制御が必須であり、この目的で光散乱式のパーティクルカウンターが活用されてきた。この計測器を固定発生源へ適用する試みが各方面で繰り返されたが、発生源では極めて高い濃度となるので相当量の希釈が前提となる。また粒子径が 10  $\mu\text{m}$  以上にも及ぶと光散乱法の測定原理の限界を超えるので、室内空間や労働環境までが限界であろう。このように他分野で発展する技術手法を活用ないし援用することは、今後も大いに試行されてよいことである。

大気環境の環境基準として、我が国は世界に先駆けて浮遊粒子状物質 (SPM) について設定した (1972 年)。ここでは 10  $\mu\text{m}$  以下の粒子を測定して環境行政の指標としてきたが、米国はかなり遅れて PM10 の環境基準を定め、さらに微細な粒子の健康影響がより大きいことを重視して、引き続いて PM2.5 の環境基準を制定した。これが国際基準となる中で、我が国も 2009 年に PM2.5 の基準を設定したが、その基準達成率は決してよい状況とはいえ

ない。大気中の微小粒子に寄与する要因には自然生成や二次的生成、大陸由来等も含まれるが、個々の産業分野の固定発生源がどの程度に関係しているか、よく分かっていない。

固定発生源からの排出実態として、従来から測定される固体粒子だけでなく、「凝縮性ダスト」の態様を明らかにすることは、大気中で生成する二次粒子の生成メカニズムを明らかにする上で、また最近制定された PM2.5 の環境濃度の寄与度を評価する上でも重要なアプローチとなると考えられる。

固定発生源のダスト測定において粒子径を区分してサンプリングをするには、ダスト捕集部の前段に慣性力や遠心力を利用した分粒装置を組み込むこととなる。既に ISO ではこの測定方法の規格化を進め<sup>53)</sup>、著者も国内委員として協力した<sup>54)</sup>。この場合には等速吸引と同時に一定流量のサンプリングをすることが前提となるが、排ガス流速が変化する場合でも対処できる新しい手法を小暮らは提案した<sup>55)</sup>。吸引流量を一定とした状態で等速吸引が行えるように吸引ノズル口径を自在に調整できる斬新なものであり、後に二段式インパクターにこれを組み込んで開発した発生源 PM10/PM2.5 サンプラーは<sup>56)</sup>、今後の発生源の微粒子測定に有用性を発揮すると期待される。

## 5. まとめ

1967 年に研究所に入所し、翌年の機構改革により公害計測課が編成されてこれに参加して以来、30 余年にわたるダスト測定グループの活動と主要な成果を概括した。

その内容は、従来の JIS 規格に規定される測定システムの主要な要素であるダスト捕集器に着目し、従来用いられたダストチューブ法を理論的、実験的に検討した上で、新しく開発されたガラス繊維製ろ紙を活用して円筒ろ紙式ダスト捕集器を考案し、さらにこれを組み込んだ平衡形ダスト試料採取装置を開発したことである。ダスト試料採取において大前提となる等速吸引を確実かつ容易に行うために、吸引ノズル内外の動圧（又は静圧）を平衡させるために両圧力を電気信号に変えてサーボバルブを自動調節することにより自動測定システムを完成させた。この結果、従来の測定方法は抜本的に改善されて、この測定システムは改訂された JIS に採用されて一層の普及を見ることができた。この規格は韓国、中国、台湾等の近隣諸国でもそれぞれの国の標準規格として活用されている。

当グループの研究はさらに、ダスト濃度の自動測定方法としての  $\beta$  線吸収（透過）法や光透過法も含む。質量濃度と等価の測定値が得られる  $\beta$  線吸収法はダクト外設置の形式を取らざるを得ないことから、ダクト外に置いたダスト捕集部までの吸引管内部のダスト沈着を防止するためにシースエア法等を検討してこれを内蔵した方式を開発し、一方、非吸引方式で実時間計測が可能な光透過法では、低濃度での測定感度を向上させるため LED 内蔵の 2 台の投受光器を用い、光学系の劣化に対する自己補償系を組み込んだダスト濃度計を開発した。

以上、ダストの特性としては、法規制との関係から最も重要となる濃度のほか、粒子径分布、電気抵抗率等の測定方法についても、標準化するなわち JIS 規格化を念頭に置きつつ「公害特別研究」を進めてきた成果の主なものをレビューした。なお、当研究グループが開発した測定器（方法）のうち、マニュアル測定方法を規定した JIS 規格<sup>2)</sup>に採用されたものはいずれも現在市販され、活用されている。

## 6. 謝辞

本稿は、資源技術試験所、公害資源研究所、そして資源環境技術総合研究所と機構改革により所名を変更したが、その中のダスト測定グループとして一貫して進めてきた「公害特別研究」で得られた成果の主なものを著者の責任でとりまとめたものである。初期の段階からグループを統括し指導された当時の今上一成公害第2部第3課長、及びともに研究推進を支えて頂いた小暮信之主任研究員、そして故吉山秀典主任研究員、白波瀬雅明主任研究員、また共同研究において共著者として協力を頂いた方々に厚く謝意を申し上げたい。さらに、著者を研究所に勧誘して頂いた燃焼部の故白澤忠雄課長、そして大学院生時代に研究の基本を鍛えて頂いた江見準金沢大学名誉教授、今は亡き吉岡直哉・井伊谷鋼一両京都大学名誉教授に心からの謝意を表します。

## 7. 参考文献

- 1) 例えば、通商産業省企業局産業公害課、ばい煙規制法の解説、経済団体連合会(1963)
- 2) JIS Z 8808-1963、煙道排ガス中のバイジン量の測定方法、  
1968年の改訂以降は、排ガス中のダスト濃度の測定方法、と改称された。
- 3) 例えば、田森、石油学会誌、Vol. 15, No. 7, p26(1972)
- 4) ASME PTC27 (1941) : Dust Separating Apparatus  
1957年の改訂版のタイトルは、Determining Dust Concentration in a Gas Stream
- 5) BS 893 (1940) : Method of Testing Dust Extracting Plant and the Emissions of Solids  
1978年の改訂版のタイトルは、Method for the measurement of the concentrations of particulate matter in ducts carrying gases
- 6) BS 3405 (1961) : Measurement of Grit and Dust Emission  
1983年の改訂版のタイトルは、Method for measurement of particulate emission including grit and dust
- 7) VDI 2066 (1966) : Leistungsmessungen an Entstaubern
- 8) EPA CFR, Title 40 (1971) : Standards of Performance for New Stationary Sources
- 9) 田森、粉体と工業、Vol. 7, No. 3, p49(1975)
- 10) 山中、井伊谷、化学工学、Vol. 33, p907(1969)
- 11) Watson, H. H., Am. Ind. Hyg. Assoc. Quart., Vol. 15, p21(1954)



- 12) Davies, C.N., Br. J. Appl. Phys. Ser., Vol.2, p921(1968)
- 13) 宮島、石岡、田森、森、金子、大気汚染学会誌、Vol.20, No.2, p96(1985)
- 14) 吉岡、江見、服部、田森、化学工学、Vol.32, No.8, p91(1968)
- 15) 田森、白沢、粉体工学研究会誌、Vol.8, No.1, p8(1971)
- 16) 田森、小暮、今上、公害と対策、Vol.7, No.5, p59(1971)
- 17) 田森、熱管理と公害、Vol.23, No.12, p27(1971)
- 18) JIS K 0083-2006 排ガス中の金属分析方法
- 19) 田森、松本、小暮、中村、今上、大気汚染研究、Vo.8, No.2, p106(1973)
- 20) 松本、田森、公害、Vo.10, No.3, p143(1975)
- 21) 松浦、鈴木、飯豊、田森、小暮、公害、Vol.12, No.2, p123(1977)
- 22) 小暮、田森、今上、大気汚染学会誌、Vo.18, No.1, p52(1983)
- 23) Dennis, R., et al., Ind. Eng. Chem., Vol.49, p294(1957)
- 24) Tamori I., N. Kogure and K. Imagami, J. Chem. Eng. Japan, Vol.13, No.3 p225(1980)
- 25) Tamori I., N. Kogure and K. Imagami, Procs. 4<sup>th</sup> Int. Clean Air Congress, p395(1977)
- 26) 今上、小暮、田森、公害、Vol.11, No.3, p121(1976)
- 27) 小暮、田森、今上、公害、Vol.14, No.2, p63(1979)
- 28) Tamori I, N. Kogure, M. Shirahase and S. Tokumaru, Procs. 3<sup>rd</sup> Int. Conf. Electrostatic Precipitation, p985(1987)
- 29) 白波瀬、小暮、田森、徳丸、粉体工学会誌、Vol.25, No.3, p132(1988)
- 30) 小暮、白波瀬、青山、田森、公害、Vol.23, No.2, p103(1988)
- 31) 小暮、田森、今上、大気汚染学会誌、Vol.14, p279(1979)
- 32) 小暮、吉山、田森、斎藤、渡邊、粉体工学会誌、Vol.23, No.2, p68(1986)
- 33) 小暮、田森、今上、太田、渡邊、大気汚染学会誌、Vol.22, No.1, p78(1987)
- 34) 吉山、市岡、小暮、田森、大気汚染学会誌、Vo.1.23, No.4, p241(1984)
- 35) 小暮、田森、今上、大気汚染学会誌、Vol.19, No.2, p114(1984)
- 36) Tamori I, N. Kogure and K. Imagami, Procs World Congress III of Chem. Eng., p751(1986)
- 37) 吉山、田森、今上、大気汚染学会誌、Vol.19, No.2, p159(1984)
- 38) 吉山、田森、植田、エアロゾル学会誌、Vol.5, No.4, p312(1990)
- 39) 小暮、白波瀬、吉山、田森、粉体工学会誌、Vol.25, No.1, p19(1988)
- 40) JIS K 9915-1989 ダストの見掛け電気抵抗率の測定方法
- 41) 小暮、白波瀬、吉山、田森、静電気学会誌、Vol.13, No.6, p496(1989)
- 42) 小暮、田森、石岡、井上、谷本、大気環境学会誌、Vol.32, No.2, p162(1997)
- 43) 田森、環境とカウンセラー、Vol.12, No.1, p2(2016)

- 44) Toynbee et al., Int. Air and Water Poll. Vol.6, p113(1962)
- 45) ISO 9096-1992 : Stationary source emissions — Determination of concentration and mass flow rate of particulate material in gas-carrying ducts — Manual gravimetric method  
その後、次の低濃度用の規格が EU 規格の翻訳版として制定されている。  
ISO 12141-2002 : Stationary source emissions — Determination of mass concentration of particulate matter (dust) at low concentration — Manual gravimetric method
- 46) (社) 日本環境測定分析協会、大気質の発生源ダスト測定分野に関する調査研究成果報告書、平成 16 年度国際規格適正化調査委員会 (2016)
- 47) (社) 日本環境測定分析協会、大気質の発生源ダスト測定分野に関する調査研究成果報告書、平成 17 年度国際規格適正化調査委員会 (2017)
- 48) 田森、小暮、白波瀬、注目発明証—ダスト物性測定装置(出願公開、昭 63-118549 号)(1990)
- 49) JIS B 7990-1977 排ガス中のダスト自動計測器(案)
- 50) 田森、オートメーション、Vol. 33, No. 14, p96(1988)
- 51) ISO 10155-1995 : Stationary source emissions — Automated monitoring of mass concentrations of particles — Performance characteristics, test methods and specifications
- 52) JIS Z 8852-2013 排ガス中のダスト濃度の連続測定方法
- 53) ISO 23210-2009 : Stationary source emissions — Determination of PM10/PM2.5 mass concentration in flue gas — Measurement at low concentration by use of impactors
- 54) 小暮、田森、粉体と工業、Vol. 40, No. 12, p55(2008)
- 55) 小暮、酒井、小高、白井、大気環境学会誌、Vol. 39, No. 3, p137(2004)
- 56) 小暮、酒井、田森、大気環境学会誌、Vol. 43, No. 1, p9(2008)

## 8. 著者略歴

- 1967 年 通産省工業技術院 資源技術試験所入所 燃焼技術部に所属
- 1968 年 機構改革に際し、公害部第 3 課 (公害計測) に配置替え
- 1970 年 機構改革と所名変更により公害資源研究所公害第 2 部第 3 課 (大気計測) に所属
- 1983 年 同上、公害第 2 部第 3 課長
- 1988 年 同上、企画室長
- 1991 年 機構改革と所名変更により資源環境技術総合研究所大気圏環境保全部長
- 1996 年 退職、ハンガリー ミシュコルツ大学ドナウイバロシュ校客員教授

1998年 帰国、(財)日本品質保証機構入構、

1999年以降 群馬大学、工学院大学など幾つかの大学の非常勤講師を兼務

2011年 辞職

1981年 京都大学より工学博士号を授与

1992年 ハンガリー ドナウイバロシュ工科大学より名誉教授号を授与

受理日：2016年11月28日